

# 論文審査の結果の要旨

氏名 神永 健一

希土類酸化物は、安定な閉殻構造の3価イオンをもつ  $RE_2O_3$  を形成する一方、2価イオンをもつ岩塩構造の希土類単酸化物 ( $REO$ ) は、熱力学的な不安定さゆえに平衡反応による合成が極めて困難である。それゆえ、これまで高压合成によるバルク多結晶体としての報告が数例あるのみで、その詳細な物性は未解明であった。特に、YO と GdO は固相での合成報告はない。本論文では、YO、LaO、GdO の3つの希土類単酸化物に注目し、パルスレーザ堆積 (PLD) 法により高品質なエピタキシャル薄膜を合成するとともに、それらの電気・磁気物性を調べ、報告している。

本研究は以下の7章より構成されている。

第1章は序論であり、本論文の背景として希土類酸化物に関する既往の研究を概観している。まず、安定相である  $RE_2O_3$  の化学的・物理的性質について述べている。また、既報の  $REO$  の高压合成法および電気・磁気物性を確認するとともに、 $REO$  のなかで唯一古くから研究が行なわれている EuO に関して PLD 法によるエピタキシャル合成の成果についてまとめている。EuO の合成に PLD 法が有用であることから、同法を他の  $REO$  へと展開することを本研究の目的として掲げている。

第2章は実験手法とその原理の説明である。まず、本研究で薄膜試料の合成法として採用した PLD 法について説明している。続いて、薄膜結晶構造解析手法である X 線回折、原子間力顕微鏡、透過型電子顕微鏡、薄膜組成解析手法および化学状態分析法である光電子分光法について、各測定手法の原理とそこから得られる情報について記述している。さらに、物理特性評価手法として、電気物性の評価手法である4端子法を用いた抵抗測定の原理と得られる物性値について解説し、磁気物性の評価手法を SQUID 素子の原理と合わせて説明している。また、紫外可視近赤外分光による光学測定について解説している。

第3章は PLD 法を用いた希土類単酸化物 YO、LaO および GdO の合成手法と、それぞれの結晶構造および化学状態について述べている。PLD が  $REO$  のような準安定相の作製に適した非平衡反応であることに着目し、合成条件を最適化することで、2価の希土類イオンを含む高品質エピタキシャル薄膜が得られることを示している。

第4章は合成した YO エピタキシャル薄膜の電気輸送特性および光学特性に

ついて述べている。成膜時に  $\text{Ar}/\text{O}_2$  ガスを導入し酸素分圧を精密に制御することで酸素欠損が生成し、欠損量に応じて格子体積が増大することを報告している。YO は、酸素欠損の導入により電気輸送特性が半絶縁的から金属的に変化する電子キャリア変調型の酸化物半導体であり、さらに光学特性から YO が  $4d^1$  電子系モット絶縁体であることを示唆している。またその妥当性について、他の  $4d,5d$  電子系モット絶縁体と比較し議論している。

第 5 章は合成した LaO エピタキシャル薄膜の電気輸送特性および磁気特性について述べている。LaO は第二種のバルク超伝導体であり、その超伝導転移温度は最大 4.5 K のドーム型の電子キャリア依存性を示すことを報告している。電子キャリアの増大に伴い格子体積およびフェルミ面の状態密度も増大することから、酸素欠損の導入が転移温度向上の起源である可能性を指摘している。また、基板により格子歪みを制御することでも転移温度の向上が図れることを示している。

第 6 章は合成した GdO エピタキシャル薄膜の電気輸送特性および磁気特性について述べている。GdO はキュリー温度 320 K の室温強磁性半導体であり、酸素欠損を導入することで電気輸送特性を変調可能であることを見出している。また、磁化特性および電気輸送特性の双方において 50 K 付近でみられる異常の起源が磁気ポーラロンである可能性について、同じく強磁性半導体である GdN を基に議論をしている。

第 7 章は結論と総括である。

以上のように、本論文は、PLD 法によるエピタキシャル薄膜合成および電気・磁気特性の評価を通じて、希土類単酸化物の物性解明に寄与するとともに、同物質群を物性探索の対象として提示するものである。これらの研究は理学の展開に大きく寄与する成果であり、博士（理学）に値する。なお本論文は複数の研究者との共同研究であるが、論文提出者が主体となっていたものであり、論文提出者の寄与は十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。